

## Bibliographic Information

**Dihydrofurancarboxanilides and agrochemical microbicides containing them.** Yoshikawa, Yukihiro; Tomitani, Kanji; Takahashi, Hiroshi; Yanase, Yuji. (Mitsui Chemicals Inc., Japan). Jpn. Kokai Tokkyo Koho (1999), 8 pp. CODEN: JKXXAF JP 11335364 A2 19991207 Heisei. Patent written in Japanese. Application: JP 98-141709 19980522. Priority: . CAN 132:1238 AN 1999:774191 CAPLUS (Copyright (C) 2006 ACS on SciFinder (R))

## Patent Family Information

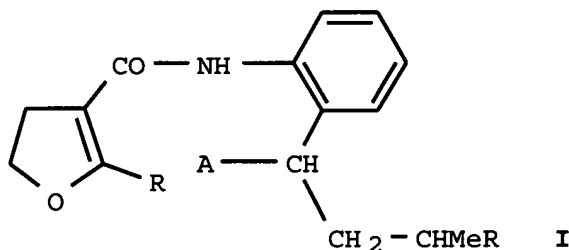
<u>Patent No.</u>	<u>Kind</u>	<u>Date</u>	<u>Application No.</u>	<u>Date</u>
JP 11335364	A2	19991207	JP 1998-141709	19980522

Priority Application

JP 1998-141709	19980522
----------------	----------

## Abstract

Agrochem. microbicides contain title compds. I (A = H, Me; B = Me, Et; R = Me, Et, CF<sub>3</sub>). 2-(1,3-Dimethylbutyl)aniline was amidated by Me 2,3-dihydrofuran-4-methyl-5-carboxylate (sic) to give 28% I (A = B = R = Me), which (at 100-130 ppm) showed 100% control of *Pyricularia oryzae*, *Botrytis cinerea*, and *Sphaerotheca fuliginea*. Formulation examples are given.



This Page Blank (usp10)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-335364

(43) 公開日 平成11年(1999)12月7日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

C 0 7 D 307/68

A 0 1 N 43/08

識別記号

F I

C 0 7 D 307/68

A 0 1 N 43/08

F

審査請求 未請求 請求項の数4 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願平10-141709

(22) 出願日 平成10年(1998)5月22日

(71) 出願人 000005887

三井化学株式会社

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(72) 発明者 吉川 幸宏

千葉県茂原市東郷1144番地 三井化学株式会社内

(72) 発明者 富谷 完治

千葉県茂原市東郷1144番地 三井化学株式会社内

(72) 発明者 高橋 完

千葉県茂原市東郷1144番地 三井化学株式会社内

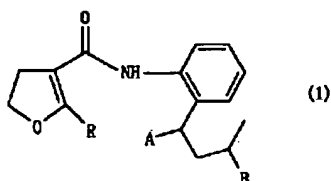
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 新規な酸アニリド誘導体およびこれを有効成分とする植物病害防除剤

(57) 【要約】

【課題】 種々の病害に対して一つの薬剤で高い防除効果を示す薬剤を提供する。

【解決手段】 一般式(1)



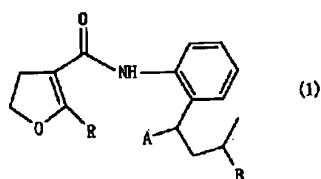
【式中、Aは水素原子またはメチル基であり、Bはメチル基またはエチル基であり、Rはメチル、エチル、トリフルオロメチル基である】で表される置換カルボン酸アニリド誘導体により、種々の植物病害を防除する。

【効果】 本発明の化合物は灰色かび病、うどんこ病、イネいもち病等の種々の病害に対して高い防除効果を有し、植物病害防除剤として有用である。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式(1)(化1)

【化1】



〔式中、Aは水素原子またはメチル基であり、Bはメチル基またはエチル基であり、Rはメチル、エチル、トリフルオロメチル基である〕で表される置換カルボン酸アニリド誘導体。

【請求項2】 AおよびBがメチル基であり、Rがメチル基である請求項1記載の酸アニリド誘導体。

【請求項3】 請求項1又は2記載の酸アニリド誘導体を使用する植物病害防除方法。

【請求項4】 請求項1又は2記載の酸アニリド誘導体を有効成分として含有する植物病害防除剤。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新規な置換カルボン酸アニリド誘導体、これを有効成分として含有する植物病害防除剤およびこれによる植物病害防除方法に関する。

【0002】

【従来の技術】近年開発された選択的作用を示す農園芸用殺菌剤は、それまで使用されてきた非選択的な農園芸用殺菌剤と異なり低薬量で安定した効果を示す。しかし、これら農園芸用殺菌剤は繰り返し使用した場合に薬剤耐性菌が出現し、効力の低下を来すという問題がある。

【0003】また、一般に植物は多種類の病害に感染するものであり、実際の使用にあたっては混剤で用いられることも多い。これらの病害においては、時期的に重なるものもあるが、一般に単剤で防除することは難しい。一方、混剤で使用する場合には、個々の薬量は少なくても、全体の使用量は一般にかなり多くなってしまうのが普通である。このような場合、一つの薬剤で他種類の病害が防除でき、低薬量でも効果的な薬剤が開発できれば、効力だけでなく環境への負荷が少ないので適用場面は広いと考えられる。

【0004】従来から芳香族カルボン酸アニリド誘導体には殺菌活性を示すものが多く知られている。最近では例えば、特開平5-221994号公報および特開平6-199803号公報にはアニリンの2位に種々の置換基を有するカルボン酸アニリド誘導体が灰色かび病に効果を有することが記載されている。これらの実施例に記載の化合物は限られており、例えば、前記カルボン酸アニリド類におけるアニリン環の2位の置換基がアルキル

基であるものとして、 $\alpha$ 位で分岐したアルキル基または $\beta$ 位で分岐したアルキル基に限られており、 $\gamma$ 位で分岐したアルキル基の例は知られていない。更に、カルボン酸がジヒドロフラン環の例は知られておらず、そこに具体的に開示された化合物の防除効果は灰色かび病の場合でも低く、うどんこ病およびイネいもち病などでは全く効果がないか、非常に弱い効果しか認められない。

【0005】一方、欧州特許公開第824099号公報には、完全不飽和ヘテロ環であるピラゾール、チアゾールカルボン酸の置換アニリド誘導体が、イネいもち病、灰色かび病、うどんこ病等に低薬量で効果を示すことが記載されているが、本発明のような不完全不飽和ヘテロ環に関する記載はない。また、ドイツ公開特許公報第19629825号公報には、アニリンのo位に置換基を有するカルボン酸アニリドが、灰色かび病、うどんこ病に効果を有することが記載されている。本公報は上位概念として種々の脂肪族化合物を包含しているが、しかし、実施例が示されているのは脂環式化合物だけであり、また、イネいもち病に対する効果も知られていない。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】従って、本発明は従来技術と比較して、灰色かび病、うどんこ病、イネいもち病をはじめとする種々の病害に対して効果を示す新規の薬剤を提供することを課題とする。

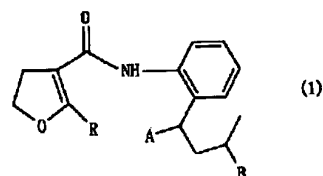
【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは前記課題を解決するため、種々のカルボン酸アニリド誘導体の有する生理活性に興味を持って研究を進めた。その結果、ジヒドロフランカルボン酸構造を有し、アニリン環上のアミノ基の2位に $\gamma$ 位で分岐したアルキル基を有することを特徴とする幾つかの新規なカルボン酸アニリド誘導体が、前記公報に記載された内容からは予想できない活性、即ち、灰色かび病、うどんこ病において優れた防除効果を示すのみならず、更には、従来は全く予想することのできなかった、イネいもち病対しても同時に優れた防除効果を示すことを見出し、本研究を完成した。

【0008】すなわち、本発明は一般式(1)(化2)

【0009】

【化2】



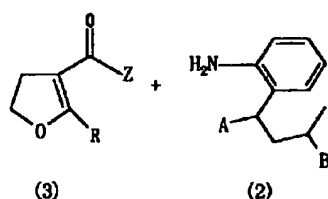
〔式中、Aは水素原子またはメチル基であり、Bはメチル基またはエチル基であり、Rはメチル、エチル、トリフルオロメチル基である〕で表される置換カルボン酸アニリド誘導体、該誘導体を有効成分として含有する植物

病害防除剤、及び該誘導体を用いる植物病害防除方法である。

#### 【0010】

【発明の実施の形態】本発明の化合物はジヒドロフランカルボン酸構造を有し、カルボン酸アニリドのアニリン環の2位にγ位で分岐したアルキル基を導入したところに特徴がある。これらの特定の基を導入した意義は大きく、本発明の化合物は前記の公報に記載された灰色かび病、うどんこ病においても予想できない優れた防除効果を示すのみならず、従来は予想することのできなかったイネいもち病に対しても優れた効果を示す。

【0011】本発明の一般式(1)で表される置換カルボン酸アニリド誘導体において、アニリン環の2位の置換基は、具体的には3-メチルブチル基、1, 3-ジメチルブチル基、3-メチルペンチル基等のγ位で分岐したアルキル基であり、特に好ましくは1, 3-ジメチル



一般式(3)で表されるカルボン酸ハライドにおいて、Zは具体的には塩素、臭素、ヨウ素原子であり、好ましくは塩素原子である。A、B、Rは前記と同様の意味を表す。

【0016】本反応に使用される溶媒としては反応に不活性なものであればよく、例えば、ヘキサン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素；ベンゼン、トルエン、クロロベンゼン、アニソール等の芳香族炭化水素類；ジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル等のエーテル類；アセトニトリル、プロピオニトリルのようなニトリル類；酢酸エチル等のエステル類；ジクロロメタン、クロロホルム、1, 2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素；ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の非プロトン性溶媒があげられ、これらの混合溶媒も使用される。

【0017】本反応はまた塩基の存在下に行ってもよく、塩基として例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化カルシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の水酸化物；酸化カルシウム、酸化マグネシウム等のアルカリ金属、アルカリ土類金属の酸化物；水素化ナトリウム、水素化カルシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の水素化物；リチウムアミド、ナトリウムアミド等のアルカリ金属のアミド；炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の炭酸塩；

ブチル基である。

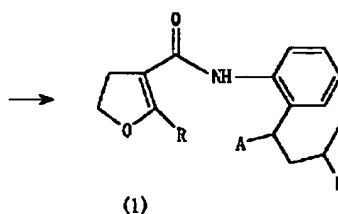
【0012】カルボン酸の置換基であるRとして具体的には、メチル基、エチル基、トリフルオロメチル基であるジヒドロフランカルボン酸である。

【0013】本発明の一般式(1)で表される置換カルボン酸アニリド誘導体は新規な化合物であり、以下の反応式に示した公知の方法と類似の方法により、一般式(2)の置換アニリンと一般式(3)で表されるカルボン酸ハライドとを溶融状態または溶媒中で反応させるか(反応式1)(化3)、または一般式(2)で表される置換アニリンと一般式(4)で表されるカルボン酸エステルとをトリメチルアルミニウムの存在下、溶媒中で反応させる(反応式2)(化4)ことにより製造できる。

【0014】(反応式1)について説明する。

#### 【0015】

#### 【化3】



#### (反応式1)

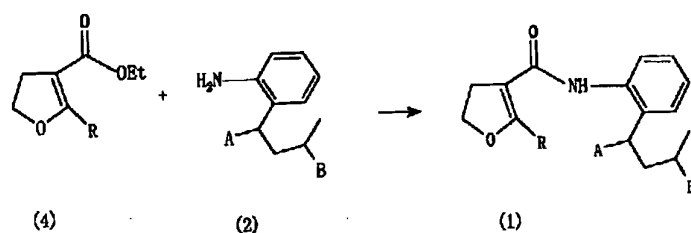
炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の炭酸水素塩；メチルリチウム、ブチルリチウム、フェニルリチウム、メチルマグネシウムクロライド等のアルカリ金属アルキルまたはアルキルマグネシウムハライド；ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウム-tert-ブトキシド、ジメトキシマグネシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属のアルコキシド；トリエチルアミン、ピリジン、N、N-ジメチルアニリン、N-メチルピペリジン、ルチジン、4-ジメチルアミノピリジン等の種々の有機塩基類があげられ、特に好ましくはトリエチルアミン、ピリジンである。これらの塩基の使用量は特に制限されるものではないが、好ましくは一般式(3)で表されるカルボン酸ハライド類に対して5モル%から20モル%過剰に使用される。

【0018】上記一般式(2)で表される置換アニリン類と一般式(3)で表されるカルボン酸ハライド類は一般的には等モル量使用されるが、収率改善のため一方を他方に対して1モル%から20モル%過剰に使用することもある。反応温度は通常-20~150℃であり、好ましくは0~40℃である。反応時間は特に制限はないが、通常30分~5時間である。

【0019】次に、(反応式2)について説明する。

#### 【0020】

#### 【化4】



(反応式 2)

式中、A、B、Rは前記と同様の意味を表す。本反応に使用される溶媒としては反応に不活性なものであればよく、例えば、ヘキサン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素；ベンゼン、トルエン、クロロベンゼン、アニソール等の芳香族炭化水素類；ジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル等のエーテル類；アセトニトリル、プロピオニトリルのようなニトリル類；酢酸エチル等のエステル類；ジクロロメタン、クロロホルム、1, 2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素；ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の非プロトン性溶媒があげられ、これらの混合溶媒も使用される。

【0021】本反応は通常、塩基の存在下に行い、塩基として例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化カルシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の水酸化物；酸化カルシウム、酸化マグネシウム等のアルカリ金属、アルカリ土類金属の酸化物；水素化ナトリウム、水素化カルシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の水素化物；リチウムアミド、ナトリウムアミド等のアルカリ金属のアミド；炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の炭酸塩；炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の炭酸水素塩；トリメラルミニウム、トリエチラルミニウム等のトリアルキラルミニウム；メチルリチウム、ブチルリチウム、フェニルリチウム、メチルマグネシウムクロライド等のアルカリ金属アルキルまたはアルキルマグネシウムハライド；ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウム-tert-ブトキシド、ジメトキシマグネシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属のアルコキシド；トリエチルアミン、ピリジン、N、N-ジメチルアニリン、N-メチルピペリジン、ルチジン、4-ジメチルアミノピリジン等の種々の有機塩基類があげられるが、通常、トリメラルミニウムである。これらの塩基の使用量は特に制限されるものではないが、好ましくは一般式(2)で表される置換アニリンに対して5モル%から200モル%過剰に使用される。

【0022】上記一般式(2)で表される置換アニリン類と一般式(4)で表されるカルボン酸エステル類は一般的には等モル量使用されるが、収率改善のため一方を

他方に対して1モル%から100モル%過剰に使用することもある。反応温度は通常-20～150℃であり、好ましくは0～80℃である。反応時間は特に制限はないが、通常30分～24時間である。

【0023】本発明の一般式(1)で表される化合物、及びそれを有効成分として含有する植物病害防除剤は、イネのいもち病(*Pyricularia oryzae*)、ウリ類のうどんこ病(*Sphaerotheca fuliginea*)、インゲン、キュウリ、トマト、イチゴ、ブドウ、ジャガイモ、ダイズ、キャベツ、ナス、レタス等の灰色かび病(*Botrytis cinerea*)、に対し常に優れた効果を示し、イネの紋枯病(*Rhizoctonia solani*)、ムギ類のうどんこ病(*Erysiphe graminis* f. sp. *hordei*; f. sp. *tritici*)、さび病(*Puccinia striiformis*; *P. graminis*; *P. recondita*; *P. hordei*)、ブドウのさび病(*Phakopsora ampelopsidis*)、リンゴの黒星病(*Venturia inaequalis*)、斑点落葉病(*Alternaria mali*)、赤星病(*Gymnosporangium yamadae*)、モニリア病(*Sclerotinia mali*)、ナシの黒斑病(*Alternaria kikuchiana*)、黒星病(*Venturia nashicola*)、赤星病(*Gymnosporangium haraeanaum*)、モモの灰星病(*Sclerotinia cinerea*)、ネギのさび病(*Puccinia allii*)、イチゴのうどんこ病(*Sphaerotheca humuli*)、インゲン、キュウリ、トマト、イチゴ、ブドウ、ジャガイモ、ダイズ、キャベツ、ナス、レタス等の菌核病(*Sclerotinia sclerotiorum*)に対しても効果を示し、その他、イネのごま葉枯病(*Cochliobolus miyabeanus*)、馬鹿苗病(*Gibberella fujikuroi*)、ムギ類のうどんこ病(*Erysiphe graminis* f. sp. *hordei*; f. sp. *tritici*)、斑葉病(*Pyrenophora graminea*)、網斑病(*Pyrenophora teres*)、赤かび病(*Gibberella zeae*)、雪腐病(*Typhula* sp.; *Micronectriella nivalis*)、裸黒穂病(*Ustilago tritici*; *U. nuda*)、眼紋病(*Pseudocercospora herpotrichoides*)、雲形病(*Rhynchosporium secalis*)、葉枯病(*Septoria tritici*)、ふ枯病(*Leptosphaeria nodorum*)、ブドウのうどんこ病(*Uncinula necator*)、黒とう病(*Elsinoe ampelina*)、晩腐病(*Glomerella cingulata*)、カンキツの黒点病(*Diaporthe citricola*)、リンゴのうどんこ病(*Podosphaera leucotricha*)、腐らん病(*Valsa mali*)、ナシの輪紋病(*Physalospora piricola*)、モモの黒星病(*Cladosporium carpophilum*)、フオモプシス腐敗病(*Phomopsis* sp.)、カキの炭そ病(*Gl*

oeosporium kaki)、落葉病(*Cercospora kaki*; *Mycosphaerella nawae*)、うどんこ病(*Phyllactinia kakikora*)、ウリ類の炭そ病(*Colletotrichum lagenarium*)、つる枯病(*Mycosphaerella melonis*)、トマトの輪紋病(*Alternaria solani*)、葉かび病(*Cladosporium fulvam*)、ナスのうどんこ病(*Erysiphe cichoracearum*)、アブラナ科野菜の黒斑病(*Alternaria japonica*)、白斑病(*Cercospora barassicae*)、ネギの黒斑病(*Alternaria porri*)、ダイズの紫斑病(*Cercospora kikukuchii*)、黒とう病(*Elsinoeglycines*)、黒点病(*Diaporthe phaseololum*)、インゲンの炭そ病(*Colletotrichum lindemuthianum*)、ラッカセイの黒波病(*Mycosphaerella personatum*)、褐斑病(*Cercospora arachidicola*)、エンドウのうどんこ病(*Erysiphe pisi*)、ジャガイモの夏疫病(*Alternaria solani*)、黒あざ病(*Rhizoctonia solani*)、チャの網もち病(*Exobasidium reticulatum*)、白星病(*Elsinoe leucospila*)、炭そ病(*Colletotrichum theae-sinensis*)、タバコの赤星病(*Alternaria longipes*)、うどんこ病(*Erysiphe cichoracearum*)、炭そ病(*Colletotrichum tabacum*)、テンサイの褐斑病(*Cercospora beticola*)、バラの黒星病(*Diplocarpon rosae*)、うどんこ病(*Sphaerotheca panosa*)、キクの褐斑病(*Septoria chrysanthemi-indici*)、白さび病(*Puccinia horiana*)、ハクサイの白斑病(*Cercospora brassicae*)、ニンジン黒葉枯病(*Alternaria dauci*)等の病害に対しても有効である可能性がある。これらの病害のうち、好ましくは、Botrytis、Sclerotinia、Rhizoctonia、Puccinia、Gymnosporangium、Pyricularia、Sphaerotheca、Alternaria、Venturia属の病害である。

【0024】本発明の一般式(1)で表される化合物を植物病害防除剤として使用する場合は、処理する植物に対して原体をそのまま使用してもよいが、一般には不活性な液体担体または固体担体と混合し、通常用いられる製剤形態である粉剤、水和剤、フロワブル剤、乳剤、粒剤およびその他の一般に慣用される形態の製剤として使用される。更に製剤上必要ならば補助剤を添加することもできる。

【0025】ここでいう担体とは、処理すべき部位への有効成分の到達を助け、また有効成分化合物の貯蔵、輸送、取扱いを容易にするために配合される合成または天然の無機または有機物質を意味する。担体としては、通常農園芸用薬剤に使用されるものであるならば固体または液体のいずれでも使用でき、特定のものに限定されるものではない。

【0026】例えば、固体担体としては、モンモリロナイト、カオリナイト等の粘土類；珪藻土、白土、タルク、パーミキュライト、石膏、炭酸カルシウム、シリカゲル、硫安等の無機物質；大豆粉、鋸屑、小麦粉等の植物性有機物質および尿素等が挙げられる。

【0027】液体担体としては、トルエン、キシレン、

クメン等の芳香族炭化水素類；クロシン、鉱油などのパラフィン系炭化水素類；アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類；ジオキサン、ジエチレングリコールジメチルエーテルなどのエーテル類；メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコールなどのアルコール類、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドなどの非プロトン性溶媒および水等が挙げられる。

【0028】更に本発明の植物病害防除剤には本発明化合物の効力を増強するために、製剤の剤型、適用場面等を考慮して目的に応じてそれぞれ単独に、または組み合わせて次の様な補助剤を添加することができる。補助剤としては、通常農園芸用薬剤に使用される界面活性剤、結合剤(例えば、リグニンスルホン酸、アルギン酸、ポリビニルアルコール、アラビアゴム、CMCナトリウム等)、安定剤(例えば、酸化防止用としてフェノール系化合物、チオール系化合物または高級脂肪酸エステル等、pH調整剤として磷酸塩、光安定剤)等を必要に応じて単独または組み合わせて使用できる。更に場合によっては防菌防黴のために工業用殺菌剤、防菌防黴剤などを添加することもできる。

【0029】補助剤について更に詳しく述べる。補助剤としては乳化、分散、拡張、湿潤、結合、安定化等の目的ではリグニンスルホン酸塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキル硫酸塩、ポリオキシアルキレンアルキルリン酸エステル塩等のアニオン性界面活性剤；ポリオキシアルキレンアルキルエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルアミン、ポリオキシアルキレンアルキルアミド、ポリオキシアルキレンアルキルチオエーテル、ポリオキシアルキレン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシアルキレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシプロピレンポリオキシエチレンブロックポリマー等の非イオン性界面活性剤；ステアリン酸カルシウム、ワックス等の滑剤；イソプロピルヒドロジェンホスフェート等の安定剤、その他メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、カゼイン、アラビアゴム等が挙げられる。しかし、これらの成分は以上のものに限定されるものではない。

【0030】本発明に係わる植物病害防除剤における一般式(1)で表される化合物の含有量は、製剤形態によっても異なるが、通常粉剤では0.05～20重量%、水和剤では0.1～80重量%、粒剤では0.1～20重量%、乳剤では1～50重量%、フロワブル製剤では1～50重量%、ドライフロワブル製剤では1～80重量%であり、好ましくは、粉剤では0.5～5重量%、水和剤では5～80重量%、粒剤では0.5～8重量%、乳剤では5～20重量%、フロワブル製剤では5～50重量%およびドライフロワブル製剤では5～50重

量%である。

【0031】補助剤の含有量は0～80重量%であり、担体の含有量は100重量%から有効成分化合物および補助剤の含有量を差し引いた量である。

【0032】本発明組成物の施用方法としては種子消毒、茎葉散布等が挙げられるが、通常当業者が利用するどのような施用方法にても十分な効力を発揮する。施用量および施用濃度は対象作物、対象病害、病害の発生程度、化合物の剤型、施用方法および各種環境条件等によって変動するが、散布する場合には有効成分量としてヘクタール当たり50～1,000gが適当であり、望ましくはヘクタール当たり100～500gである。また水和剤、フロワブル剤または乳剤を水で希釈して散布する場合、その希釈倍率は200～20,000倍が適当であり、望ましくは1,000～5,000倍である。

【0033】本発明の植物病害防除剤は他の殺菌剤、殺虫剤、除草剤および植物成長調節剤等の農薬、土壌改良剤または肥効物質との混合使用は勿論のこと、これらとの混合製剤も可能である。殺菌剤としては例えば、トリアジメホン、ヘキサコナゾール、プロクロラズ、トリフルミゾール等のアゾール系殺菌剤；メタラキシル、オキサディキシル等のアシルアラニン系殺菌剤；チオファネートメチル、ペノミル等のベンズイミダゾール系殺菌剤；マンゼブ等のジチオカーバメート系殺菌剤およびテトラクロロイソフタロニトリル、硫黄等が挙げられ、殺虫剤としては例えば、フェントロチオン、ダイアジノン、ピリダフェンチオン、クロルピリホス、マラソン、フェントエート、ジメトエート、メチルチオメトン、プロチオホス、DDVP、アセフェート、サリチオン、EPN等のリン系殺虫剤；NAC、MTMC、BPMC、ピリミカブ、カルボスルファン、メソミル等のカーバメート系殺虫剤およびエトフェンブロックス、ペルメトリン、フェンバレーレート等のピレスロイド系殺虫剤等が挙げられるが、これに限定されるものではない。

#### 【0034】

【実施例】次に実施例を挙げて本発明の化合物を更に具体的に説明する。

実施例1 N-〔2-〔1,3-ジメチルブチル〕フェニル〕-2,3-ジヒドロフラン-4-メチル-5-カルボン酸アミドの合成（化合物No.1、反応式2）  
窒素気流下、2-〔1,3-ジメチルブチル〕アニリン1.0g（5.64mmol）を塩化メチレン10mlに溶解し、0℃で攪拌下に、トリメチルアルミニウムの15%トルエン溶液3mlを滴下した。10分間攪拌後、2,3-ジヒドロフラン-4-メチル-5-カルボン酸メチルエステル0.80g（5.64mmol）を滴下した。1時間攪拌後、終夜攪拌した。反応液を1N塩酸に排出し、酢酸エチルで抽出し、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣の

褐色オイルをn-ヘキサンから結晶化させ、目的物を0.46gの無色結晶として得た（収率：28%）。

融点：116.7～118.5℃

<sup>1</sup>NMR（270MHz, CDCl<sub>3</sub>, δ ppm, J:Hz）：0.87(6H, d, J=5.9), 1.22(3H, d, J=6.6), 1.36-1.54(3H, m), 2.29(3H, s), 2.87-3.03(3H, m), 4.49(2H, t, J=8.8), 6.80(1H, brs), 7.11-7.25(3H, m), 7.78(1H, dd, J=7.3, 1.5)

【0035】実施例2 N-〔2-〔1,3-ジメチルブチル〕フェニル〕-2,3-ジヒドロフラン-4-メチル-5-カルボン酸アミドの合成（化合物No.1、反応式1）

2-〔1,3-ジメチルブチル〕アニリン0.23g（1.30mmol）をピリジン2mlに溶解し、室温で攪拌下に、2,3-ジヒドロフラン-4-メチル-5-カルボン酸クロリド0.19g（1.30mmol）を滴下した。1時間攪拌後、反応液を5%塩酸に排出し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣の褐色オイルをn-ヘキサンから結晶化させ、目的物を0.26gの無色結晶として得た（収率：70%）。

【0036】実施例3 N-〔2-〔1,3-ジメチルブチル〕フェニル〕-2,3-ジヒドロフラン-4-エチル-5-カルボン酸アミドの合成（化合物No.2、反応式2）

窒素気流下、2-〔1,3-ジメチルブチル〕アニリン0.73g（4.11mmol）を塩化メチレン10mlに溶解し、0℃で攪拌下に、トリメチルアルミニウムの15%トルエン溶液3mlを滴下した。10分間攪拌後、2,3-ジヒドロフラン-4-エチル-5-カルボン酸エチルエステル0.70g（4.11mmol）を滴下した。1時間攪拌後、終夜攪拌した。反応液を1N塩酸に排出し、酢酸エチルで抽出し、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出溶媒：n-ヘキサン；酢酸エチル=6：1）で精製し、n-ヘキサンから結晶化させ、目的物を0.07gの無色結晶として得た（収率：6%）。

融点：81.0～85.2℃

<sup>1</sup>NMR（270MHz, CDCl<sub>3</sub>, δ ppm, J:Hz）：0.87(6H, d, J=5.9), 1.15(3H, t, J=7.3), 1.22(3H, d, J=6.6), 1.34-1.61(3H, m), 2.78(2H, q, J=7.3), 2.84-3.02(1H, m), 2.98(2H, t, J=9.5), 4.48(2H, t, J=8.8), 6.81(1H, brs), 7.10-7.25(3H, m), 7.80(1H, d, J=9.5)

【0037】次に本発明に関わる植物病害防除剤の製剤例および試験例を示す。

〔製剤例〕

製剤例 1（粉剤）

化合物番号1の化合物2部およびクレー98部を均一に



混合粉碎し、有効成分2%を含有する粉剤を得た。

【0038】製剤例 2 (水和剤)

化合物番号2の化合物10部、カオリン70部、ホワイトカーボン18部およびアルキルベンゼンスルホン酸カルシウム2部を均一に混合粉碎して均一組成の微粉末状の、有効成分10%を含有した水和剤を得た。

【0039】製剤例 3 (水和剤)

化合物番号1の化合物20部、アルキルベンゼンスルホン酸カルシウム3部、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル5部および白土72部を均一に混合粉碎して、均一組成の微粉末状の、有効成分20%を含有した水和剤を得た。

【0040】製剤例 4 (水和剤)

化合物番号1の化合物50部、リグニンスルホン酸ナトリウム1部、ホワイトカーボン5部および珪藻土44部を混合粉碎して、有効成分50%を含有する水和剤を得た。

【0041】製剤例 5 (フロワブル剤)

化合物番号2の化合物5部、プロピレングリコール7部、リグニンスルホン酸ナトリウム4部、ジオクチルスルホサキシネートナトリウム塩2部、および水82部をサンドグラインダーで湿式粉碎し有効成分5%を含有するフロワブル剤を得た。

【0042】製剤例 6 (フロワブル剤)

化合物番号1の化合物10部、プロピレングリコール7部、リグニンスルホン酸ナトリウム2部、ジオクチルスルホサキシネートナトリウム塩2部、および水79部をサンドグラインダーで湿式粉碎し、有効成分10%を含有するフロワブル剤を得た。

【0043】【試験例】以下に試験例を示す。尚、対照化合物については以下のものである。対照化合物1～3は市販剤であり、

対照化合物1：トリシクラゾール、商品名＝ビーム、化学名＝5-メチル-1, 2, 4-トリアゾロ[3, 4-b]ペンチアゾール

対照化合物2：プロシミドン、商品名＝スミレックス、化学名＝N-(3, 5-ジクロロフェニル)-1, 2-ジメチルシクロプロパン-1, 2-ジカルボキシイミド

対照化合物3：トリアジメホン、商品名＝バイレトン、化学名＝1-(4-クロロフェノキシ)-3, 3-ジメチル-1-(1, 2, 4-トリアゾール-1-イル)-2-ブタノン

対照化合物4：N-(2-(2-メチルプロピル)フェニル)-1, 3-ジメチルピラゾール-4-カルボン酸アミド (特開平6-199803記載)

融点：144～146℃

【0044】試験例1 イネいもち病防除試験

温室内でポットに2葉期まで40～0本ずつ生育させたイネ (品種：マンゲツモチ) に、製剤例3に準じて調製した水和剤を所定濃度 (有効成分濃度100ppm) に

希釈して、3ポット当たり50mlずつ散布した。薬液が乾いた後、オートミール培地上で培養したイネいもち病菌から調製した分生孢子懸濁液 ( $4 \times 10^5$ 個/ml) をイネ全体に噴霧接種し、温度25℃、湿度95%以上の人工気象室に8日間保った。接種8日後、イネ5本当たりのイネいもち病の病斑数を次の指標に従って調査し、下記の式に従って防除価を求めた。結果を第1表 (表1) に示す。

【0045】

発病度	0：発病なし
	1：病斑数1～2個
	2：病斑数3～5個
	3：病斑数6～10個
	4：病斑数11個以上

各処理区および無処理区の平均値を発病度とした。

【0046】防除価 (%) = (1 - 処理区の発病度 / 無処理区の発病度) × 100

【0047】試験例2 インゲン灰色かび病防除試験  
温室内で直径7.5cmのプラスチックポットに子葉の展開まで2本ずつ生育させたインゲン (品種：つるなしトッパクropp) に、製剤例3に準じて調製した水和剤を所定濃度 (有効成分濃度130ppm) に希釈して、3ポット当たり50mlずつ散布した。薬液が乾いた後PDA培地上で培養した灰色かび菌 (MBC耐性、RS菌) から調製した分生孢子懸濁液 ( $1 \times 10^6$ 個/ml) を子葉上に噴霧接種し、温度20～23℃、湿度95%以上の温室に7日間保った。接種7日後、インゲン1葉あたりに灰色かび病の病斑が占める面積を次の指標に従って調査して発病度を求め、下記の式に従って防除価を算出した。結果を第1表 (表1) に示す。

【0048】

発病度	0：発病なし
	1：病斑の面積が5%以下
	2：病斑の面積が5～25%
	3：病斑の面積が25～50%
	4：病斑の面積が50%以上

各処理区および無処理区の平均値を発病度とした。

【0049】防除価 (%) = (1 - 処理区の発病度 / 無処理区の発病度) × 100

【0050】試験例3 キュウリうどんこ病防除試験  
温室内で直径7.5cmのプラスチックポットに1.5葉期まで2本ずつ生育させたキュウリ (品種：相模半白) に、製剤例3に準じて調製した水和剤を所定濃度 (有効成分濃度100ppm) に希釈して、3ポット当たり50mlずつ散布した。薬液が乾いた後、少量の展着剤を加えた水にキュウリうどんこ病分生孢子を懸濁して調製した分生孢子懸濁液 ( $1 \times 10^6$ 個/ml) を噴霧接種し温室内に7日間保った。接種7日後、キュウリ1葉あたりにうどんこ病の病斑が占める面積を試験例2に記載の指標に従って調査して発病度を求め、下記の式

に従って防除価を算出した。結果を第1表（表1）に示す。

【0051】防除価（％）＝（1－処理区の発病度／無

処理区の発病度）×100

【0052】

【第1表】

表1. 化合物の防除価

化合物番号	試験例1 イネ いもち病	試験例2 インゲン 灰色かび病	試験例3 キュウリ うどんこ病
1	100	100	100
2	100	100	100
対照化合物1	100	---	---
対照化合物2	---	100	---
対照化合物3	---	---	100
対照化合物4	20	15	30

【0053】

【発明の効果】本発明の化合物は、単剤でも灰色かび病、ウリ類のうどんこ病のみでなく、イネいもち病に対

しても優れた効果を示し、植物病害防除剤として有用である。

フロントページの続き

(72)発明者 柳瀬 勇次  
千葉県茂原市東郷1144番地 三井化学株式会社内